

501P1457US00J

SAD
#6

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

3-29.01

JC872 U.S. PRO
09/966861



別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office

出願年月日

Date of Application:

2000年 9月29日

出願番号

Application Number:

特願2000-338288

出願人

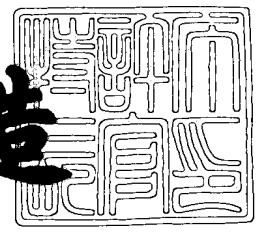
Applicant(s):

ソニー株式会社
タマス ケケシ
一色 実

2001年 5月31日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

及川耕造



出証番号 出証特2001-3050736

【書類名】 特許願

【整理番号】 0000794906

【提出日】 平成12年 9月29日

【あて先】 特許庁長官殿

【国際特許分類】 C22B 23/06

C23C 14/14

【発明者】

【住所又は居所】 宮城県多賀城市明月2丁目1番15号 ファインマテリアル株式会社内

【氏名】 打越 雅仁

【発明者】

【住所又は居所】 宮城県多賀城市明月2丁目1番15号 ファインマテリアル株式会社内

【氏名】 横山 紀夫

【発明者】

【住所又は居所】 宮城県仙台市青葉区霊屋下11番10号 チサンマンション広瀬川1-303

【氏名】 タマス ケケシ

【発明者】

【住所又は居所】 宮城県仙台市太白区鉤取3丁目2番14号

【氏名】 一色 実

【特許出願人】

【識別番号】 000002185

【氏名又は名称】 ソニー株式会社

【代表者】 出井 伸之

【特許出願人】

【住所又は居所】 宮城県仙台市青葉区霊屋下11番10号 チサンマンション広瀬川1-303

【氏名又は名称】 タマス ケケシ

【国籍】 ハンガリー

【特許出願人】

【識別番号】 593178672

【氏名又は名称】 一色 実

【代理人】

【識別番号】 100098785

【弁理士】

【氏名又は名称】 藤島 洋一郎

【手数料の表示】

【予納台帳番号】 019482

【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】

【物件名】 明細書 1

【物件名】 図面 1

【物件名】 要約書 1

【包括委任状番号】 9708092

【書類名】 明細書

【発明の名称】 高純度コバルトおよびその製造方法ならびに高純度コバルトターゲット

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 純度が 99.99 質量%以上であり、不純物である銅の濃度が 50 質量 p p b 以下であることを特徴とする高純度コバルト。

【請求項 2】 残留抵抗比が 150 以上であり、不純物である銅の濃度が 50 質量 p p b 以下であることを特徴とする高純度コバルト。

【請求項 3】 塩化コバルト水溶液に不純物として含まれる銅を 1 価イオンとし、塩酸濃度を 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下の範囲内に調整して、1 価イオンの銅を陰イオン交換樹脂により塩化コバルト水溶液から分離する工程

を含むことを特徴とする高純度コバルトの製造方法。

【請求項 4】 塩化コバルト水溶液に不純物として含まれる銅を 1 価イオンとする工程と、

塩化コバルト水溶液の塩酸濃度を 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下の範囲内に調整する工程と、

銅を 1 価イオンとしかつ塩酸濃度を調整したのち、塩化コバルト水溶液を陰イオン交換樹脂と接触させ、塩化コバルト水溶液から銅を分離する工程と

を含むことを特徴とする請求項 3 記載の高純度コバルトの製造方法。

【請求項 5】 塩化コバルト水溶液に不活性ガスを吹き込むと共に、塩化コバルト水溶液とコバルトとを接触させることにより、塩化コバルト水溶液に含まれる銅を 1 価イオンとすることを特徴とする請求項 3 記載の高純度コバルトの製造方法。

【請求項 6】 亜鉛，テクネチウム，ルテニウム，パラジウム，銀，カドミウム，インジウム，スズ，レニウム，オスミウム，イリジウム，白金，金，水銀，タリウム，鉛，ビスマスおよびポロニウムからなる群のうちの少なくとも 1 種の不純物を、銅と共に塩化鉄水溶液から分離することを特徴とする請求項 3 記載の高純度コバルトの製造方法。

【請求項 7】 更に、

銅を分離した塩化コバルト水溶液から塩化コバルトあるいはその水和物を得る工程と、

塩化コバルトあるいはその水和物を、水素雰囲気中において 6 2 3 K 以上 8 7 3 K 未満の温度で加熱し、コバルトを得る工程と

を含むことを特徴とする請求項 3 記載の高純度コバルトの製造方法。

【請求項 8】 更に、

得られたコバルトを、活性水素を含むプラズマ生成ガスを用いたプラズマアークで溶融し、酸素、窒素、炭素、硫黄、ハロゲン、アルカリ金属およびアルカリ土類金属からなる群のうちの少なくとも 1 種の不純物を除去する工程

を含むことを特徴とする請求項 7 記載の高純度コバルトの製造方法。

【請求項 9】 更に、

塩化コバルト水溶液の塩酸濃度を 7 kmol/m^3 以上 11 kmol/m^3 以下の範囲内に調整したのち、塩化コバルト水溶液を陰イオン交換樹脂と接触させてコバルトを吸着させ、塩化コバルト水溶液に含まれるチタン、クロム、マンガン、ニッケル、アルミニウム、アルカリ金属およびアルカリ土類金属からなる群のうちの少なくとも 1 種の不純物とコバルトとを分離する工程と、

陰イオン交換樹脂に吸着させたコバルトを、塩酸溶液により陰イオン交換樹脂から溶離させる工程と

を含むことを特徴とする請求項 3 記載の高純度コバルトの製造方法。

【請求項 10】 陰イオン交換樹脂に吸着させたコバルトを、濃度が 2.5 kmol/m^3 以上 5 kmol/m^3 以下の塩酸溶液により陰イオン交換樹脂から溶離させ、コバルトと共に陰イオン交換樹脂に吸着された鉄、亜鉛、モリブデン、テクネチウム、ルテニウム、パラジウム、銀、カドミウム、インジウム、スズ、タンゲステン、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金、水銀、タリウム、鉛、ビスマスおよびポロニウムからなる群のうちの少なくとも 1 種の不純物とコバルトとを分離することを特徴とする請求項 9 記載の高純度コバルトの製造方法。

【請求項 11】 塩化コバルトあるいはその水和物を、水素雰囲気中におい

て 6 2 3 K 以上 8 7 3 K 未満の温度で加熱し、コバルトを得る工程を含むことを特徴とする高純度コバルトの製造方法。

【請求項 1 2】 純度が 9 9 . 9 9 質量%以上であり、不純物である銅の濃度が 5 0 質量 p p b 以下であることを特徴とする高純度コバルトターゲット。

【請求項 1 3】 残留抵抗比が 1 5 0 以上であり、不純物である銅の濃度が 5 0 質量 p p b 以下であることを特徴とする高純度コバルトターゲット。

【発明の詳細な説明】

【0 0 0 1】

【発明の属する技術分野】

本発明は、銅などの不純物の含有量を低減した高純度コバルトおよびその製造方法ならびに高純度コバルトターゲットに関する。

【0 0 0 2】

【従来の技術】

V L S I (v e r y L a r g e S c a l e I n t e g r a t e d c i r c u i t) , U L S I (u l t r a L S I) などの半導体デバイスは、例えば、シリコン (S i) ウェハーの上に様々な金属の薄膜が設けられた構造を有している。近年では、配線材料としてコバルト (C o) を用いる検討がなされているが、コバルトに有害な不純物が含まれていると、半導体デバイスに誤動作あるいは劣化などを生じさせる原因となり好ましくない。例えば、銅 (C u) はシリコン中での拡散速度が大きく短絡の原因となり、ウラン (U) あるいはトリウム (T h) などの放射性元素は誤作動を引き起こす可能性が高く、アルカリ金属あるいはアルカリ土類金属は特性劣化の原因となる。

【0 0 0 3】

ところが、現在世界的に取引されている粗コバルトの品位は 9 8 % ~ 9 9 . 8 % 程度である。このような粗コバルトには、ニッケル (N i) , 鉄 (F e) あるいはクロム (C r) などの遷移金属、および酸素 (O) , 窒素 (N) あるいは硫黄 (S) などのガス性元素をはじめ、様々な不純物が含有されている。よって、コバルトを半導体デバイスに利用するには、粗コバルトからこれらの不純物を除去し高純度化する必要がある。また、コバルトは、半導体デバイス以外にも、強

磁性金属としての特性を生かし、磁気記録媒体あるいは磁気記録ヘッドなどの材料として非常に有望視されている。コバルトの高純度化はこれらへの利用を図る上でも必須である。

【0004】

粗コバルトから不純物を除去する方法は、これまでも種々研究されてきており、例えば、溶媒抽出、イオン交換あるいは電解精製などの湿式処理による金属元素の分離、乾燥水素ガス (H_2) 処理による酸素あるいは窒素などのガス性元素の除去、または浮遊帯熔融精製がある。

【0005】

【発明が解決しようとする課題】

しかしながら、溶媒抽出では、抽出・逆抽出の制御が難しく工業的に安定にコバルトを精製することが難しいという問題があった。イオン交換では、ほぼすべての金属不純物を分離できるものの、銅の除去が困難であり、精製前後で含有量が変わらないという問題があった。電解精製では、電解液の pH 領域での制御が必要であり、またニッケルあるいは銅などの除去が困難であるという問題もあった。浮遊帯熔融精製はある程度純化した金属に適用して更に純度をあげることを目的とするが、コバルトの場合、浮遊帯熔融による効果は非常に少ないことが報告されている (V. G. Glebovsky, et al., Materials Letters, 36 (1998), pp. 308-314)。よって、容易に安定してコバルトを高純度化する方法、特に銅を除去する方法の開発が望まれていた。

【0006】

本発明はかかる問題点に鑑みてなされたもので、その第1の目的は、不純物である銅の含有量が低減された高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットを提供することにある。

【0007】

本発明の第2の目的は、容易に安定して高純度コバルトを得ることができる高純度コバルトの製造方法を提供することにある。

【0008】

【課題を解決するための手段】

本発明による高純度コバルトは、純度が 99.99 質量%以上であり、不純物である銅の濃度が 50 質量 p p b 以下のものである。

【0009】

本発明による他の高純度コバルトは、残留抵抗比が 150 以上であり、不純物である銅の濃度が 50 質量 p p b 以下のものである。

【0010】

本発明による高純度コバルトの製造方法は、塩化コバルト水溶液に不純物として含まれる銅を 1 価イオンとし、塩酸濃度を 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下の範囲内に調整して、1 価イオンの銅を陰イオン交換樹脂により塩化コバルト水溶液から分離する工程を含むものである。

【0011】

本発明による他の高純度コバルトの製造方法は、塩化コバルトあるいはその水和物を、水素雰囲気中において 623 K 以上 873 K 未満の温度で加熱し、コバルトを得る工程を含むものである。

【0012】

本発明による高純度コバルトターゲットは、純度が 99.99 質量%以上であり、不純物である銅の濃度が 50 質量 p p b 以下のものである。

【0013】

本発明による他の高純度コバルトターゲットは、残留抵抗比が 150 以上であり、不純物である銅の濃度が 50 質量 p p b 以下のものである。

【0014】

本発明による高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットでは、銅の濃度が 50 質量 p p b 以下に高純度化されている。

【0015】

本発明による高純度コバルトの製造方法では、銅を 1 価イオンとし、塩酸濃度を調整する。これにより、銅は陰イオン交換樹脂に吸着されるのに対して、コバルトは吸着されず、塩化コバルト水溶液から銅が容易にかつ安定して分離される。

【 0 0 1 6 】

本発明による他の高純度コバルトの製造方法では、塩化コバルトあるいはその水和物を、水素雰囲気中において 6 2 3 K 以上 8 7 3 K 未満の温度で加熱する。これにより、容易にかつ安定してコバルトが得られる。

【 0 0 1 7 】

【発明の実施の形態】

以下、本発明の実施の形態について、図面を参照して詳細に説明する。

【 0 0 1 8 】

本発明の一実施の形態に係る高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットは、純度が 9 9 . 9 9 質量%以上、または残留抵抗比が 1 5 0 以上であり、不純物である銅の濃度が 5 0 質量 p p b 以下のものである。

【 0 0 1 9 】

ここで、純度（すなわち化学的純度）は、現在利用できる分析機器・方法を用いて定量可能なすべての不純物濃度を定量し、1 から差し引いたものである（一色実，三村耕司，日本金属学会会報、3 1（1 9 9 2），8 8 0 - 8 8 7 参照）。例えば、分析機器にグロー放電質量分析（G l o w D i s c h a r g e M a s s S p e c t r o s c o p y）を使用し、定量可能な 7 0 元素あるいはそれ以上の不純物を測定して 1 から差し引くことにより求められる。酸素、窒素あるいは水素などのガス性元素については、必要に応じて非分散赤外線吸収法，熱伝導度法あるいは不活性ガス中で融解したのちカラムで分離し熱伝導度を測定するなどの適当な方法が適用される。

【 0 0 2 0 】

また、残留抵抗比は高純度金属の純度を示す一つの指標となるものであり、数 1 に示したように 2 9 8 K における比抵抗と 4 . 2 K における比抵抗との比を取ったものである。比抵抗は抵抗値（電気抵抗）と数 2 に示したような関係があるので、残留抵抗比は数 3 に示したように変換することができ、温度による体積変化が無視できる程度であれば、2 9 8 K における抵抗値と 4 . 2 K における抵抗値との比で近似される。なお、コバルトは強磁性金属であるので、抵抗を測定する際には、地磁気，消磁条件あるいは測定電流による磁場などによる影響を抑え

る必要があり、通常 60 kA/m 程度の縦磁場をかけて測定を行うようにする（高木清一，まてりあ，33（1994），6-10 参照）。

【0021】

【数 1】

$$RRR = \rho_{298K} / \rho_{4.2K}$$

RRR；残留抵抗比

ρ_{298K} ；298 K における比抵抗 (Ωm)

$\rho_{4.2K}$ ；4.2 K における比抵抗 (Ωm)

【0022】

【数 2】

$$\rho = R \times (S / L)$$

ρ ；比抵抗 (Ωm)

R；抵抗値 (Ω)

S；電流の方向に垂直な断面積 (m^2)

L；長さ (m)

【0023】

【数 3】

$$RRR = \frac{R_{298K} \times \frac{S_{298K}}{L_{298K}}}{R_{4.2K} \times \frac{S_{4.2K}}{L_{4.2K}}} = \frac{R_{298K}}{R_{4.2K}}$$

RRR；残留抵抗比

R_{298K} ， S_{298K} ， L_{298K}
；298 K における抵抗値，断面積，長さ

$R_{4.2K}$ ， $S_{4.2K}$ ， $L_{4.2K}$
；4.2 K における抵抗値，断面積，長さ

【0024】

この高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットは、例えば、半導体デバイス、磁気記録媒体、磁気記録ヘッドあるいは環境半導体を用いたデバイスなど

の材料として用いられる。なお、環境半導体とは、地球上に豊富に存在しかつ環境に優しい材料から構成される半導体物質のことであり、例えば、ケイ化鉄 (FeSi_2) あるいはケイ化カルシウム (Ca_2Si) が挙げられる (環境半導体研究会ホームページ (<http://kan.eng.jm.saitama-u.ac.jp/SKS/index2.html>) 参照)。

【0025】

このような高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットは、次のようにして製造することができる。

【0026】

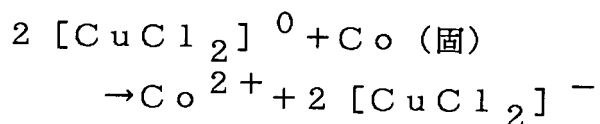
図1および図2は本実施の形態に係る高純度コバルトの製造工程を表すものである。まず、銅などの不純物を含むコバルトを塩酸溶液に溶解し、塩化コバルト (CoCl_2) 水溶液を作製する (ステップS101)。その際、塩酸濃度を 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下の範囲内に調整する。

【0027】

次いで、図3に示したように、この塩化コバルト水溶液Mをコバルトなどの金属11と共に容器12に入れ、窒素ガス (N_2) あるいはアルゴンガス (Ar) などの不活性ガス13を吹き込むと共に、塩化コバルト水溶液Mと金属11とを例えばスターラー14により攪拌して十分に接触させる (ステップS102)。これにより、塩化コバルト水溶液Mに含まれる銅は、例えば化1に示したように反応し、2価イオンから1価イオンとなる。

【0028】

【化1】



【0029】

ここで塩化コバルト水溶液Mに不活性ガス13を吹き込むのは、塩化コバルト水溶液Mに溶存している酸素を追い出すためであり、化1に示した反応などは塩化コバルト水溶液Mに酸素が溶存していると進行しない。この不活性ガス13の吹き込みは塩化コバルト水溶液Mと金属11とを攪拌する際に同時に行ってもよ

く、塩化コバルト水溶液Mに金属 1 1 を入れる前に行ってもよい。

【 0 0 3 0 】

金属 1 1 は粉末のように表面積の大きいものが好ましい。塩化コバルト水溶液 M との接触面積を大きくすることにより、銅を十分に反応させることができるからである。金属 1 1 にはコバルト以外のものも用いることができるが、好ましいのはコバルトである。塩化コバルト水溶液 M に他の不純物が混入することを可能な限り防止するためである。

【 0 0 3 1 】

なお、ここでは塩化コバルト水溶液 M の塩酸濃度を調整したのち、塩化コバルト水溶液 M と金属 1 1 とを接触させて銅を 1 価イオンとするようにしたが、塩化コバルト水溶液 M を金属 1 1 と接触させて銅を 1 価イオンとしたのち、塩化コバルト水溶液 M の塩酸濃度を調整するようにしてもよい。

【 0 0 3 2 】

続いて、図 4 に示したように、陰イオン交換樹脂 2 1 を充填したカラム 2 2 を用意し、塩化コバルト水溶液 M を貯蔵タンク 2 3 からカラム 2 2 に流し込み、陰イオン交換樹脂 2 1 と十分に接触させる（ステップ S 1 0 3）。塩化コバルト水溶液 M の流速は、塩化コバルト水溶液 M が陰イオン交換樹脂 2 1 と十分に接触するように、樹脂容量分を 1 時間かけて流す程度（1 b e d v o l u m e (s) / h o u r）が好ましい。ここでは、銅を 1 価イオンとしているので、1 価イオンの銅は陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着され、コバルトは陰イオン交換樹脂 2 1 に全く吸着することなくカラム 2 2 から溶出される。この時の溶出液中における金属イオン濃度の変化（溶離曲線）を図 5 に示す。図 5 において横軸は溶出容量、縦軸は金属イオンの最大濃度で規格化した濃度である。このように、2 価イオンのコバルトと 1 価イオンの銅との溶離曲線のピークは全く重なる部分がなく、塩化コバルト水溶液から銅を完全に分離できることが分かる。すなわち、回収タンク 2 4 には、銅が分離された塩化コバルト水溶液 M が回収される。

【 0 0 3 3 】

なお、塩化コバルト水溶液 M に亜鉛（Z n）などの不純物が含まれている場合には、図 5 に示したように、ステップ S 1 0 3 において亜鉛も銅と共に陰イオン

交換樹脂 2 1 に吸着され、塩化コバルト水溶液 M から分離される。亜鉛と同様にして分離される元素には、例えば、テクネチウム (T c) , ルテニウム (R u) , パラジウム (P d) , 銀 (A g) , カドミウム (C d) , インジウム (I n) , スズ (S n) , レニウム (R e) , オスミウム (O s) , イリジウム (I r) , 白金 (P t) , 金 (A u) , 水銀 (H g) , タリウム (T l) , 鉛 (P b) , ビスマス (B i) およびポロニウム (P o) がある。すなわち、塩化コバルト水溶液 M にこれらのうちの少なくとも 1 種の不純物が含まれている場合には、銅と共に分離される。

【 0 0 3 4 】

銅を分離したのち、塩化コバルト水溶液 M にチタン (T i) , クロム (C r) , マンガン (M n) , ニッケル (N i) , アルミニウム (A l) , アルカリ金属およびアルカリ土類金属からなる群のうちの少なくとも 1 種の不純物が含まれている場合には、塩化コバルト水溶液 M の塩酸濃度を 7 kmol/m^3 以上 11 kmol/m^3 以下の範囲内に調整し、図 4 に示したように、塩化コバルト水溶液 M を陰イオン交換樹脂 2 1 と十分に接触させる (ステップ S 1 0 4) 。これにより、コバルトは陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着され、陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着されないチタン、クロム、マンガン、ニッケル、アルミニウム、アルカリ金属またはアルカリ土類金属と分離される。

【 0 0 3 5 】

また、塩化コバルト水溶液 M に鉄、亜鉛、モリブデン (M o) , テクネチウム、ルテニウム、パラジウム、銀、カドミウム、インジウム、スズ、タンゲステン (W) , レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金、水銀、タリウム、鉛、ビスマスおよびポロニウムからなる群のうちの少なくとも 1 種の不純物が含まれている場合には、ステップ S 1 0 4 においてこれらの不純物もコバルトと共に陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着される。この場合には、コバルトを陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着させたのち、濃度が 2.5 kmol/m^3 以上 5 kmol/m^3 以下の塩酸溶液を流して陰イオン交換樹脂 2 1 からコバルトを溶離させ、コバルトと共に陰イオン交換樹脂に吸着された鉄、亜鉛、モリブデン、テクネチウム、ルテニウム、パラジウム、銀、カドミウム、インジウム、スズ、タンゲステン、レニ

ウム、オスミウム、イリジウム、白金、金、水銀、タリウム、鉛、ビスマスまたはポロニウムとコバルトとを分離する（ステップ S 1 0 5）。

【 0 0 3 6 】

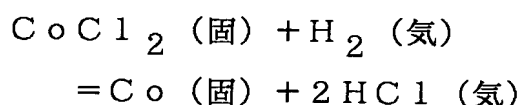
但し、ここでは、ステップ S 1 0 3 において既に亜鉛、テクネチウム、ルテニウム、パラジウム、銀、カドミウム、インジウム、スズ、レニウム、オスミウム、イリジウム、白金、金、水銀、タリウム、鉛、ビスマスおよびポロニウムは銅と共に塩化コバルト水溶液 M から分離されているので、ステップ S 1 0 5 では主として鉄、モリブデンおよびタングステンがコバルトと分離される。

【 0 0 3 7 】

コバルトを溶離したのち、得られた塩化コバルト水溶液 M を蒸発乾固させ、塩化コバルトあるいはその水和物とする（ステップ S 1 0 6）。そののち、塩化コバルトあるいはその水和物を、図 6 に示したような装置を用い、水素雰囲気中において 6 2 3 K 以上 8 7 3 K 未満（3 5 0 °C 以上 6 0 0 °C 未満）の温度で加熱する（ステップ S 1 0 7）。これにより、塩化コバルトあるいはその水和物は化 2 に示したように反応し、コバルトが得られる。なお、図 6 に示した装置は、加熱炉 3 1 内に反応管 3 2 が設置され、反応管 3 2 には一端部から水素ガス 3 3 が供給されると共に、他端部から反応により生成した塩化水素ガスが排出されるようになっており、排出された塩化水素ガスは処理部 3 4 において吸収されるようになっている。

【 0 0 3 8 】

【化 2】



【 0 0 3 9 】

その際、加熱温度を 6 2 3 K 以上とするのは、これよりも低温では塩化コバルトを十分に反応させることができないからであり、加熱温度を 8 7 3 K 未満とするのは、8 7 3 K 未満でも塩化コバルトを十分に反応させることができるので、できるだけ低温の方がコストを低減することができると共に、製造装置を簡易とできるからである。図 7 に加熱温度と反応速度（還元速度）との関係を示す。図

7において横軸は時間、縦軸は還元率であり、反応速度は、化3に示したように、1 molのコバルトが還元されると2 molの塩化水素が生成することに基づき、回収した塩化水素の濃度変化から求めたものである。図7からも、623 K以上873 K未満で十分にコバルトを還元できることが分かる。

【0040】

塩化コバルトを反応させたのち、得られたコバルトを、活性水素を含むプラズマ生成ガスを用いたプラズマアークで溶融し、酸素、窒素、炭素(C)、硫黄、ハロゲン、アルカリ金属およびアルカリ土類金属からなる群のうちの少なくとも1種の不純物を除去する(ステップS108)。これにより、本実施の形態に係る高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットが得られる。

【0041】

なお、本実施の形態に係る高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットは、次のような手順で塩化コバルト水溶液Mから不純物を分離して製造するようにしてもよい。

【0042】

まず、塩化コバルト水溶液Mに不活性ガスを吹き込むと共に、塩化コバルト水溶液Mを金属11と接触させて銅を1価イオンとする(ステップS102)。次いで、塩化コバルト水溶液Mの塩酸濃度を 7 kmol/m^3 以上 11 kmol/m^3 以下に調整し、陰イオン交換樹脂21にコバルトを吸着させてチタンなどの不純物と分離する(ステップS104)。続いて、濃度が 2.5 kmol/m^3 以上 5 kmol/m^3 以下の塩酸溶液により陰イオン交換樹脂21に吸着させたコバルトを溶離させ、コバルトと共に陰イオン交換樹脂21に吸着されたモリブデンなどの不純物と分離する(ステップS105)。そののち、塩化コバルト水溶液Mの塩酸濃度を 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下に調整し(ステップS101)、陰イオン交換樹脂21に銅を吸着させて塩化コバルト水溶液Mから分離する(ステップS103)。

【0043】

また、銅を1価イオンとしたのち(ステップS102)、塩化コバルト水溶液Mの塩酸濃度を調整して陰イオン交換樹脂21にコバルトを吸着させてチタンな

どの不純物と分離し（ステップ S 1 0 4）、次いで、濃度が 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下の塩酸溶液により陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着させたコバルトを溶離させ、コバルトと共に陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着された銅などの不純物と分離し、そののち、塩化コバルト水溶液 M の塩酸濃度を 2.5 kmol/m^3 以上 5 kmol/m^3 以下に調整して陰イオン交換樹脂 2 1 に鉄、モリブデンあるいはタングステンなどの不純物を吸着させて塩化コバルト水溶液 M から分離するようにしてもよい。

【 0 0 4 4 】

これらの場合、陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着させたコバルトを溶離する塩酸溶液の濃度を 2.5 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下に調整し、銅と共に鉄、モリブデンあるいはタングステンなどの不純物をコバルトと分離するようにしてもよい。

【 0 0 4 5 】

更に、塩化コバルト水溶液 M の塩酸濃度を調整して陰イオン交換樹脂 2 1 にコバルトを吸着させてチタンなどの不純物と分離し（ステップ S 1 0 4）、濃度を調整した塩酸溶液により陰イオン交換樹脂 2 1 に吸着させたコバルトを溶離させてモリブデンなどの不純物と分離したのち（ステップ S 1 0 5）、銅を 1 価イオンとし（ステップ S 1 0 2）、塩化コバルト水溶液 M の塩酸濃度を調整して陰イオン交換樹脂 2 1 に銅を吸着させて分離する（ステップ S 1 0 3）ようにしてもよい。但し、この場合、銅を 1 価イオンとする工程で不純物が混入される可能性があるので、上述したいずれかの手順で行う方が好ましい。

【 0 0 4 6 】

このように本実施の形態の高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットによれば、銅の濃度を 5 0 質量 p p b 以下とすることができるので、例えば、半導体デバイスに用いても短絡を生じさせることがなく、半導体デバイスの特性を向上させることができる。また、磁気記録媒体、磁気記録ヘッドあるいは環境半導体を用いたデバイスなどにも用いることができ、それらの特性を向上させることができる。

【 0 0 4 7 】

また、本実施の形態に係る高純度コバルトの製造方法によれば、銅を1価イオンとし、塩酸濃度を 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下の範囲内に調整するようにしたので、銅を陰イオン交換樹脂に吸着させて塩化コバルト水溶液から容易に分離することができる。よって、銅の濃度が低い高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットを容易に安定して得ることができる。

【0048】

更に、塩化コバルトあるいはその水和物を、水素雰囲気中において 623 K 以上 873 K 未満の温度で加熱するようにしたので、低温で容易に安定してコバルトを得ることができる。よって、製造コストを低減することができると共に、製造装置を簡素化することができる。

【0049】

【実施例】

更に、本発明の実施例について、図1ないし図6を参照して具体的に説明する。なお、以下の実施例では、上記実施の形態において用いた符号および記号をそのまま対応させて用いる。

【0050】

まず、スクラップコバルトを原料とし、これを濃度 1.5 kmol/m^3 の塩酸溶液にコバルト濃度が 0.34 kmol/m^3 (20 g/dm^3) となるように溶解し、塩化コバルト水溶液Mを作製した（ステップS101）。次いで、図3に示したように、この塩化コバルト水溶液Mに粉末状のコバルト11を入れ、不活性ガスを吹き込みつつ攪拌して銅を1価イオンとした（ステップS102）。続いて、図4に示したように、塩化コバルト水溶液Mを陰イオン交換樹脂21に接触させ、銅を吸着させて塩化コバルト水溶液Mから分離した（ステップS103）。

【0051】

銅を分離したのち、塩化コバルト水溶液Mの塩酸濃度を 9 kmol/m^3 とし、塩化コバルト水溶液Mを陰イオン交換樹脂21に接触させてコバルトを吸着させ、チタンなどの不純物と分離した（ステップS104）。そののち、濃度 4 kmol/m^3 の塩酸溶液により陰イオン交換樹脂21からコバルトを溶離させ、

モリブデンなどの不純物と分離した（ステップ S 1 0 5）。

【 0 0 5 2 】

コバルトを陰イオン交換樹脂 2 1 から溶離したのち、得られた塩化コバルト水溶液 M を蒸発乾固させ、塩化コバルトあるいはその水和物を得た（ステップ S 1 0 6）。そののち、図 6 に示したように、得られた塩化コバルトあるいはその水和物を水素雰囲気中において 7 4 3 K で加熱し、コバルトを得た（ステップ S 1 0 7）。図 8 に得られたコバルトの粒子構造を表す写真を示す。図 8 から分かるように、得られたコバルトは粉末状ではなく、スポンジ状のものであった。コバルトを得たのち、このコバルトを活性水素を含むプラズマアークで熔融して酸素などの不純物を除去し（ステップ S 1 0 8）、高純度コバルトを得た。

【 0 0 5 3 】

得られた高純度コバルトについて、グロー放電質量分析により不純物の定量を行い純度を求めると共に、残留抵抗比を求めた。その結果を表 1 に示す。表 1 に示したように、銅の濃度は 5 0 質量 p p b 以下と極めて低く、純度は 9 9 . 9 9 9 7 %、残留比抵抗は 2 0 7 と極めて高い値が得られた。

【 0 0 5 4 】

【表 1】

| | 元素 | 濃度 (質量 ppm) | 元素 | 濃度 (質量 ppm) | 元素 | 濃度 (質量 ppm) |
|-------|-----------|----------------|----|----------------|----|----------------|
| 不純物濃度 | Al | 0.035 | Fe | 0.570 | Rh | < 0.010 |
| | As | 0.700 | Ga | < 0.020 | Ru | 0.020 |
| | B | < 0.010 | Hf | 0.010 | Sb | < 0.020 |
| | Ba | < 0.010 | In | 0.005 | Si | < 0.010 |
| | Be | < 0.010 | K | 0.010 | Sn | 0.050 |
| | Bi | < 0.010 | Li | < 0.010 | Th | 0.001 |
| | Ca | 0.045 | Mg | < 0.010 | Ti | < 0.010 |
| | Cd | < 0.050 | Mn | < 0.010 | U | 0.002 |
| | Cl | < 0.050 | Mo | < 0.050 | V | 0.080 |
| | Cr | 0.026 | Na | < 0.010 | Zn | < 0.050 |
| | Cu | 0.045 | Ni | 0.720 | Zr | < 0.010 |
| | F | < 0.050 | P | < 0.050 | Pb | < 0.010 |
| 純度 | 99.9997 % | | | | | |
| 残留抵抗比 | 207 | | | | | |

【0055】

すなわち、銅を1価イオンとすると共に塩酸濃度を 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下に調整することにより、塩化コバルト水溶液から銅を容易に分離でき、銅の濃度を50質量ppb以下に低減した高純度コバルトを容易に得られることが分かった。

【0056】

以上、実施の形態および実施例を挙げて本発明を説明したが、本発明は上記実施の形態および実施例に限定されるものではなく、種々変形可能である。例えば

、上記実施の形態および実施例では、塩化コバルトあるいはその水和物を水素雰囲気中において加熱しコバルトを生成する際に、加熱温度を 6 2 3 K 以上 8 7 3 K 未満とするようにしたが、8 7 3 K 以上で加熱するようにしてもよい。

【0 0 5 7】

また、上記実施の形態および実施例では、銅以外の不純物を除去する方法についても具体的に説明したが、他の方法により除去するようにしてもよい。

【0 0 5 8】

更に、上記実施の形態および実施例では、塩化コバルト水溶液から不純物を分離する方法について具体的に説明したが、他の方法により不純物を分離した場合についても、塩化コバルトあるいはその水和物を水素雰囲気中において 6 2 3 K 以上 8 7 3 K 未満の温度で加熱することによりコバルトを生成する方法を適用することができる。

【0 0 5 9】

【発明の効果】

以上説明したように請求項 1 あるいは請求項 2 に記載の高純度コバルト、または請求項 1 2 あるいは請求項 1 3 に記載の高純度コバルトターゲットによれば、銅の濃度を 5 0 質量 p p b 以下とすることができるので、例えば、半導体デバイスに用いても短絡を生じさせることがなく、半導体デバイスの特性を向上させることができるという効果を奏する。また、磁気記録媒体、磁気記録ヘッドあるいは環境半導体を用いたデバイスなどにも用いることができ、それらの特性を向上させることができるという効果も奏する。

【0 0 6 0】

また、請求項 3 ないし請求項 1 0 のいずれか 1 に記載の高純度コバルトの製造方法によれば、銅を 1 価イオンとし、塩酸濃度を 0.1 kmol/m^3 以上 3 kmol/m^3 以下の範囲内に調整するようにしたので、銅を陰イオン交換樹脂に吸着させて塩化コバルト水溶液から容易に分離することができる。よって、銅の濃度が低い高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットを容易に安定して得ることができるという効果を奏する。

【0 0 6 1】

更に、請求項 7 または請求項 1 1 に記載の高純度コバルトの製造方法によれば、塩化コバルトあるいはその水和物を、水素雰囲気中において 6 2 3 K 以上 8 7 3 K 未満の温度で加熱するようにしたので、低温で容易に安定してコバルトを得ることができる。よって、製造コストを低減することができると共に、製造装置を簡素化することができるという効果を奏する。

【図面の簡単な説明】

【図 1】

本発明の一実施の形態に係る高純度コバルトおよび高純度コバルトターゲットの製造工程を表す流れ図である。

【図 2】

図 1 に続く製造工程を表す流れ図である。

【図 3】

図 1 に示した一製造工程を説明するための図である。

【図 4】

図 1 に示した他の一製造工程を説明するための図である。

【図 5】

陰イオン交換樹脂の溶出液中における金属イオン濃度の変化を表す特性図である。

【図 6】

図 2 に示した一製造工程を説明するための図である。

【図 7】

塩化コバルトの加熱温度と反応速度との関係を表す特性図である。

【図 8】

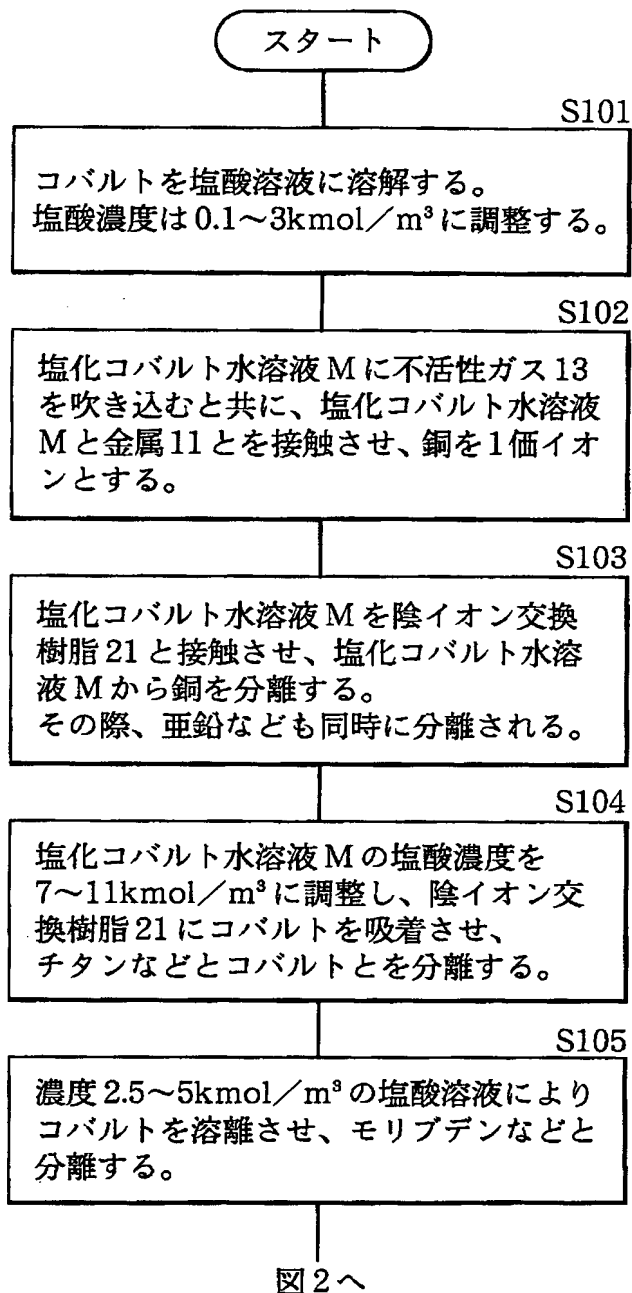
本発明の実施例において得られたコバルトの粒子構造を表す写真である。

【符号の説明】

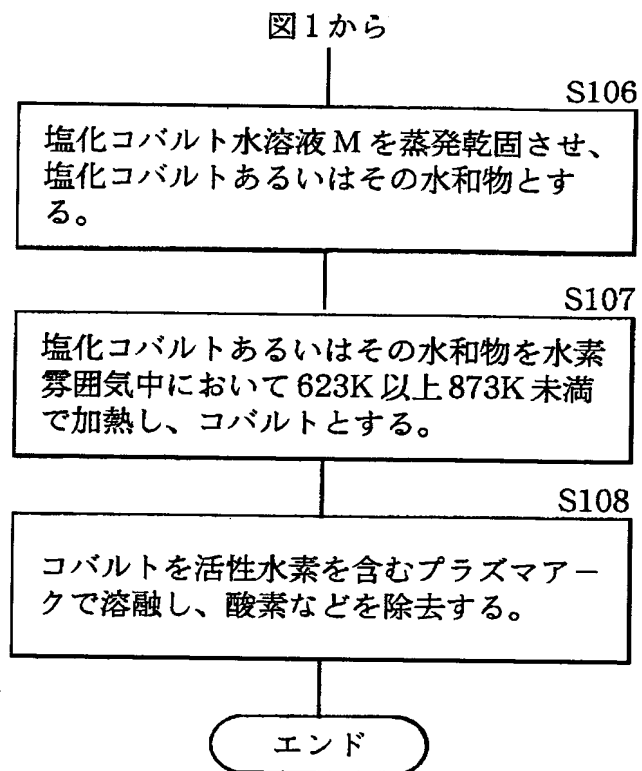
1 1 …金属、1 2 …容器、1 3 …不活性ガス、1 4 …スターラー、2 1 …陰イオン交換樹脂、2 2 …カラム、2 3 …貯蔵タンク、2 4 …回収タンク、3 1 …加熱炉、3 2 …反応管、3 3 …水素ガス、3 4 …処理部、M …塩化コバルト溶液。

【書類名】 図面

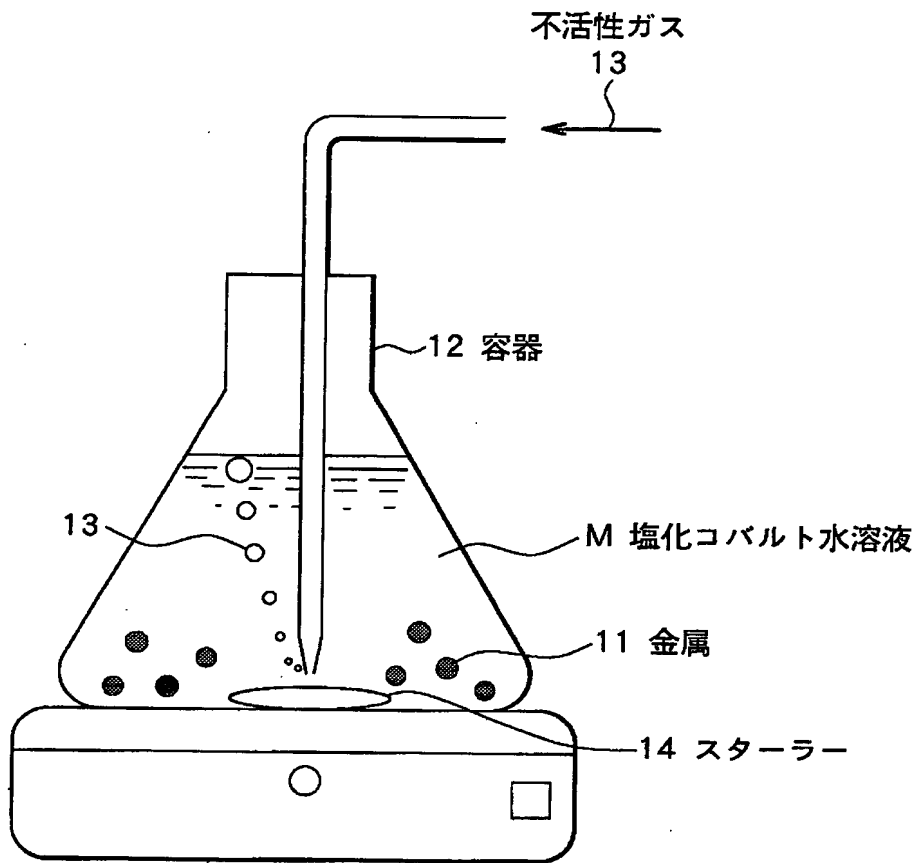
【図 1】



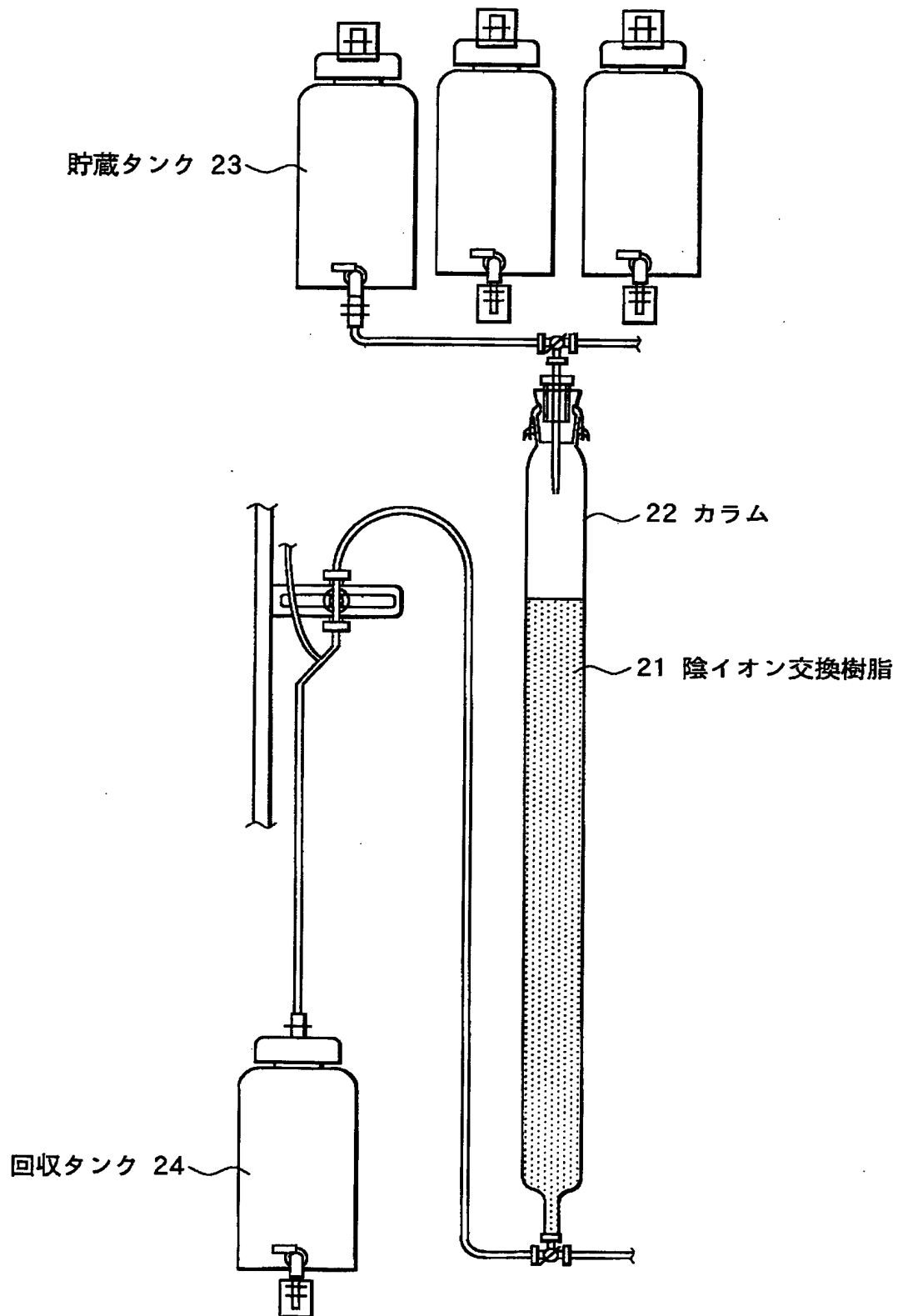
【図 2】



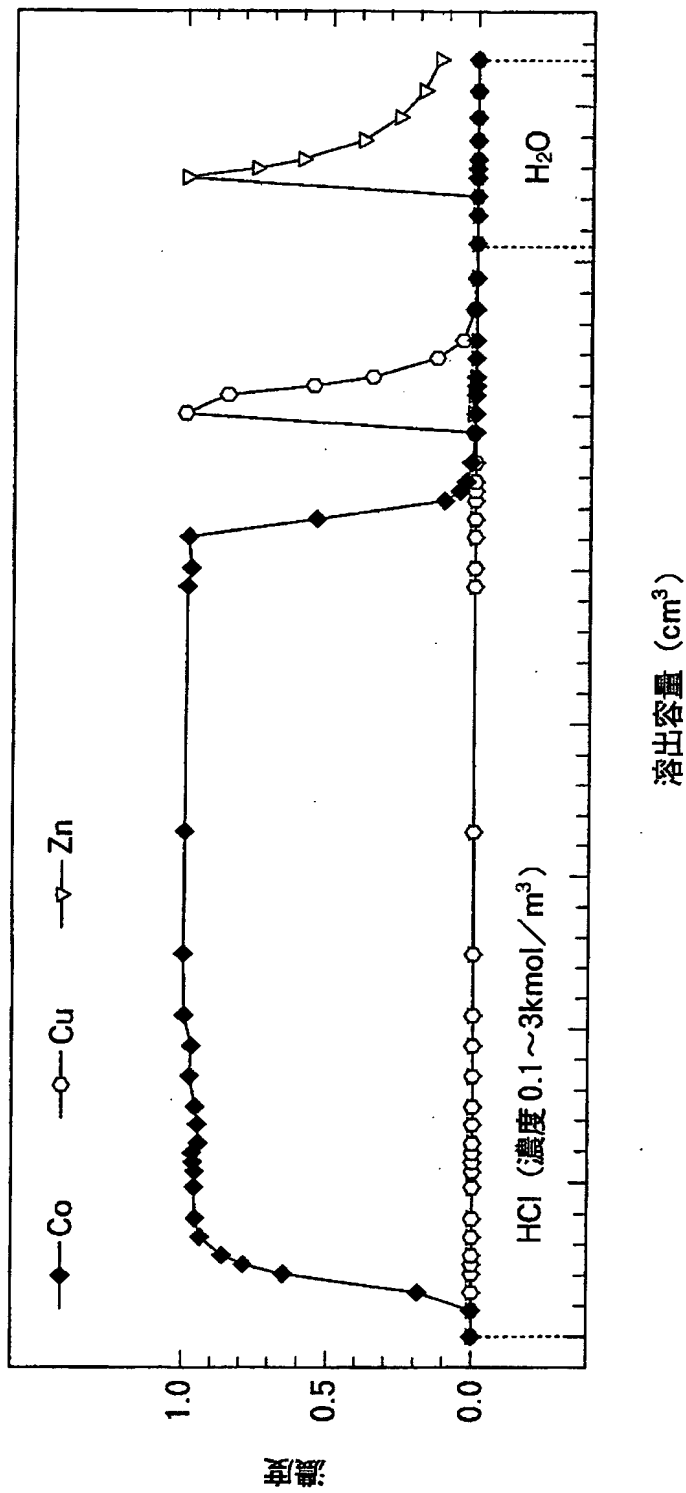
【図 3】



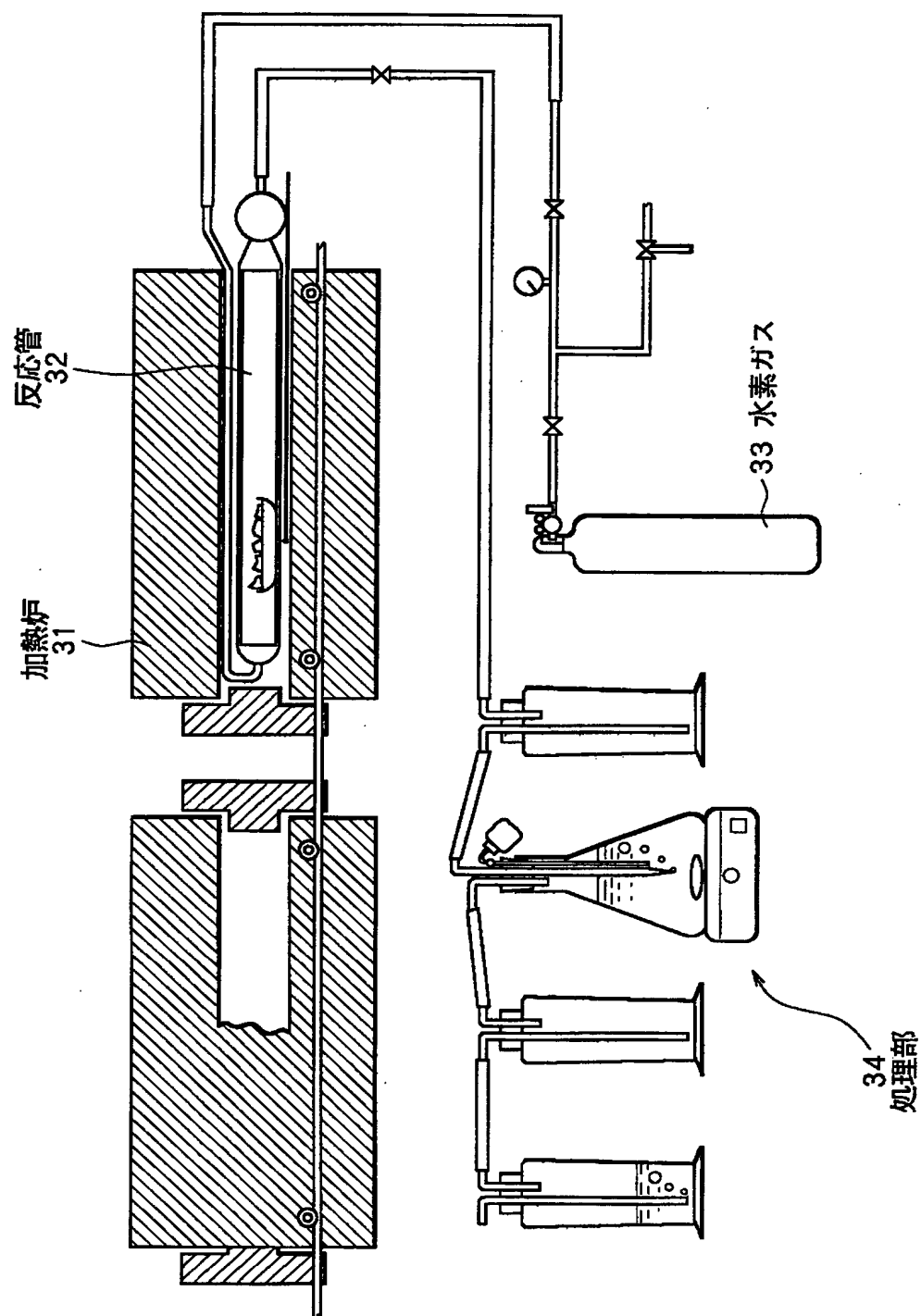
【図4】



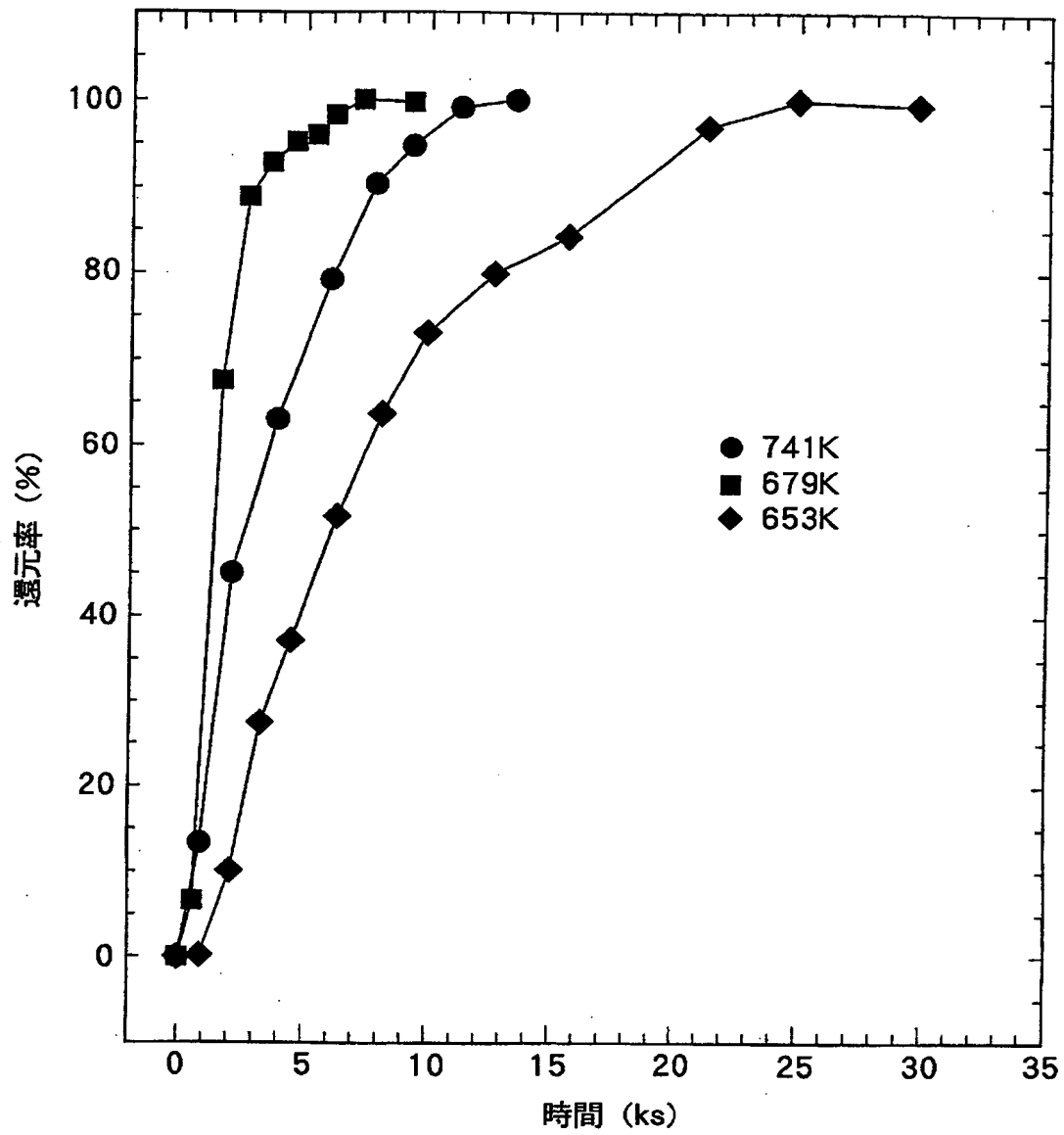
【図 5】



【図 6】



【図 7】



【図 8】

図面代用写真



【書類名】 要約書

【要約】

【課題】 銅などの不純物の含有量を低減した高純度コバルトおよびその製造方法ならびに高純度コバルトターゲットを提供する。

【解決手段】 銅などの不純物を含むコバルトを塩酸溶液に溶解し、塩酸濃度が $0.1 \sim 3 \text{ kmol/m}^3$ の塩化コバルト水溶液を作製する。次いで、塩化コバルト水溶液にコバルトを入れ、不活性ガスを吹き込みつつ攪拌し、塩化コバルト水溶液に含まれる銅を1価イオンとする。続いて、塩化コバルト水溶液を陰イオン交換樹脂の充填されたカラムに流し込む。このとき、1価イオンの銅は陰イオン交換樹脂に吸着されるが、コバルトは陰イオン交換樹脂に吸着されない。よって、銅を塩化コバルト水溶液から分離することができる。そののち、塩化コバルト水溶液を蒸発乾固させ、水素雰囲気中において $623 \sim 873 \text{ K}$ の温度で加熱し、コバルトを生成する。

【選択図】 図5

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [000002185]

1. 変更年月日 1990年 8月30日
[変更理由] 新規登録
住 所 東京都品川区北品川6丁目7番35号
氏 名 ソニー株式会社

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [593178672]

1. 変更年月日 1993年 9月27日

[変更理由] 新規登録

住 所 宮城県仙台市太白区鉤取3丁目2-14

氏 名 一色 実

出 願 人 履 歴 情 報

識別番号 [500457726]

1. 変更年月日 2000年 9月29日

[変更理由] 新規登録

住 所 宮城県仙台市青葉区霊屋下11番10号 チサンマンション
広瀬川1-303

氏 名 タマス ケケシ